

(2)

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公表特許公報 (A)

(11) 特許出願公表番号

特表2002-519473

(P2002-519473A)

(43) 公表日 平成14年7月2日(2002.7.2)

(51) Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テ-マ-ト* (参考)
C 0 9 J	9/02	C 0 9 J	4 J 0 0 4
	7/00		4 J 0 4 0

審査請求 未請求 予備審査請求 有 (全 35 頁)

(21) 出願番号 特願2000-557318(P2000-557318)  
 (86) (22) 出願日 平成11年1月8日(1999.1.8)  
 (85) 翻訳文提出日 平成12年12月18日(2000.12.18)  
 (86) 国際出願番号 P C T / U S 9 9 / 0 0 4 6 0  
 (87) 国際公開番号 W O 0 0 / 0 0 5 6 3  
 (87) 国際公開日 平成12年1月6日(2000.1.6)  
 (31) 優先権主張番号 0 9 / 1 0 8 , 1 5 8  
 (32) 優先日 平成10年6月30日(1998.6.30)  
 (33) 優先権主張国 米国 (US)

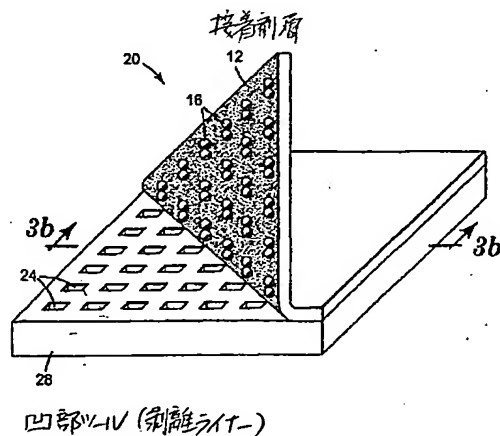
(71) 出願人 ミネソタ マイニング アンド マニュフ  
 アクチャリング カンパニー  
 アメリカ合衆国, ミネソタ 55144-1000,  
 セント ポール, スリーエム センター  
 (72) 発明者 グレン・コネル  
 アメリカ合衆国55133-3427ミネソタ州セ  
 ント・ポール, ポスト・オフィス・ボック  
 ス33427  
 (72) 発明者 バリー・エス・カーペンター  
 アメリカ合衆国55133-3427ミネソタ州セ  
 ント・ポール, ポスト・オフィス・ボック  
 ス33427  
 (74) 代理人 弁理士 青山 稔 (外1名)

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 ファインピッチの異方導電性接着剤

## (57) 【要約】

開示されているのは、接着剤層(12)と、それぞれが接着剤層に接着され、規則的配列に配列されている導電性粒子(16)とを有する異方導電性接着剤(10)である。導電性粒子のサイズは、接着剤層の厚さより少なくともやや小さい。同様に開示されているのは、接着剤層と、接着剤層にそれぞれ接着している導電性粒子と、凹部(24)の規則配列を有する剥離ライナ(28)を有する異方導電性接着剤である。導電性粒子は凹部において単一層で存在している。異方導電性接着剤は、凹部の規則配列中の導電性粒子を低接着性表面に配置することにより作成される。導電性粒子が接着剤層にそれぞれ接着するように接着剤層を上部に積層する。異方導電性接着剤を用いて、対向する回路層上のファインピッチの電極を電氣的に接続することができる。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 (a) 実質的に均一な厚さを有する接着剤層(12)と、

(b) 前記接着剤層の厚さより少なくともやや小さいサイズで、各粒子がそれぞれ前記接着剤層に接着している複数の導電性粒子(16)と、  
を含む異方導電性接着剤(10)であって、

前記複数の導電性粒子が周期的配列の粒子部位(14)を含み、前記粒子部位の大部分は、存在する粒子の所定の最大数以下であり、特定の粒子部位に存在する粒子は近接配置されている異方導電性接着剤(10)。

【請求項2】 それぞれが所定の幅と、長さ、深さを有し、各凹部の深さが、実質的に同じである複数の凹部(24)を含む主面を有する剥離ライナ(28)と、

前記凹部中に単一層で存在する導電性粒子(16)と、

前記剥離ライナ上にあつて前記導電性粒子と接触していて、前記剥離ライナから除去可能で、前記導電性粒子が付いており、前記導電性粒子以外の導電性材料は実質的に含まない接着剤層(12)と、  
を含む異方導電性接着剤テープ。

【請求項3】 それぞれが所定の幅と、長さ、深さを有し、各凹部の深さが実質的に同じ複数の凹部(44)を含む低接着性表面を有するツール(38)を与える工程と、

導電性粒子が前記凹部中で単一層を形成するように前記導電性粒子(16)を前記凹部に配置する工程と、

前記凹部間の領域において前記ツール上に存在する導電性粒子を実質的に除去する工程と、

前記凹部内の前記導電性粒子がそれぞれに接着剤層に接着するように前記ツールの前記低接着性表面上に前記接着剤層を形成する工程と、  
を含み、

前記接着剤層は前記ツールから除去可能で、前記導電性粒子が付いており、前記導電性粒子以外の導電性材料は実質的に含まない異方導電性接着剤の製造方法

【請求項4】 第1の複数の導電性接触部位を有する第1の回路層（50）を提供する工程と、

第2の複数の導電性接触部位を有する第2の回路層（60）を提供する工程と

、  
前記第1の回路層および第2の回路層を位置付けて前記第1の複数の接触部位を前記第2の複数の接触部位と位置合わせすることによって複数の接触部位対を形成する工程と、

（a）実質的に均一な厚さを有する接着剤層（12）と、

（b）前記接着剤層の厚さより少なくともやや小さいサイズで、各粒子がそれぞれに前記接着剤層に接着している複数の導電性粒子（16）とを含み、

前記複数の導電性粒子が周期的配列の粒子部位を含み、前記粒子部位の大部分は、存在する粒子の所定の最大数以下であり、特定の粒子部位に存在する粒子は近接配置されている異方導電性接着剤を提供する工程と、

前記異方導電性接着剤テープを前記回路層の前記接触部位間に配置する工程と

、  
少なくとも実質的な数の前記導電性接触部位対が少なくとも1つの導電性粒子を介して分離した電気接続を形成するまで前記回路層に圧力を印加する工程と、  
を含む電気接続を形成する方法。

【請求項5】 前記粒子部位の大部分が粒子と同数である請求項1記載の異方導電性接着剤または請求項4記載の電気接続の形成方法。

【請求項6】 前記粒子が実質的に同じサイズであり、かつ／または実質的に球状である請求項1記載の異方導電性接着剤、請求項2記載の異方導電性接着剤テープ、請求項3記載の異方導電性接着剤の製造方法または請求項4記載の電気接続の形成方法。

【請求項7】 前記粒子が前記接着剤層の厚さより実質的に小さい請求項1記載の異方導電性接着剤、請求項2記載の異方導電性接着剤テープ、請求項3記載の異方導電性接着剤の製造方法または請求項4記載の電気接続の形成方法。

【請求項8】 前記接着剤層が熱または圧力を加えることにより軟化可能である請求項1記載の異方導電性接着剤、請求項2記載の異方導電性接着剤テープ

、請求項3記載の異方導電性接着剤の製造方法または請求項4記載の電気接統の形成方法。

【請求項9】 前記凹部が二次元の周期的配列である請求項2記載の異方導電性接着テープまたは請求項3記載の異方導電性接着剤の製造方法。

【請求項10】 圧力印加工程中、接触部位対間に配置する導電性粒子を接着剤層に押し付けて、接触部位対において両接触部位と接触させる請求項4記載の方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

## 発明の分野

本発明は、異方導電性接着剤および異方導電性接着剤の製造方法に関する。

## 【0002】

## 発明の背景

導電性接着剤は、電極パッドを分離した回路や多層回路の層間で結合したり電氣的に接続するのに簡便で有用な方法を提供するものである。多くの独立した電極パッドが比較的狭い領域に存在するときは、 $z$ -軸導電性接着剤としても知られている異方導電性接着剤を用いるのが有用である。異方導電性接着剤は、接着剤を介して対向電極間を導通させるが、接着剤の面は導通させない。このように、独立に導通することを意味する近接電極パッドは、対向する回路または回路層上の対の電極には結合され電氣的に接続される一方で、互いに電氣的に孤立したままとすることができる。

## 【0003】

導電性接着剤の一つの製造方法は、接着剤層中に導電性粒子をランダムに分散するものである。このように形成された接着剤を適正に位置合わせされた回路層間に配置する。回路層を合わせて押し付けると、対向する電極対間の導電性粒子が電極パッドと接触する。一つの粒子を上部と下部の電極の両方に接触させると、接着剤層を通る垂直な導電性経路を形成する一連の粒子によって接触がなされる。さらに、接着剤そのものが回路層に機械的に結合して、近接する電極が電氣的に短絡しないよう導電性粒子を絶縁する。かかる接着剤の例は米国特許第4, 113, 981号(Fujitara)に開示されている。

## 【0004】

高密度接続が望まれるときには不具合が生じる。高密度接続だと、電極間の間隔が小さく、電極パッドも小さい。かかる「ファインピッチ」回路を接続するのに $z$ -軸導電性接着剤を用いると、近接する電極間に電氣的な短絡が生じる可能性がある。近接する電極間の距離が、接着剤中の導電性粒子間の平均間隔に近づくにつれて、接触している導電性粒子の孤立したグループ(「クラスタ」)(垂直寸

法のあるグループ)か「ストリング」(水平グループ)のいずれか)が近接する電極間の間隙を橋絡して、回路を短絡させる。この問題を解決する一つの方法は、接着剤中への導電性粒子の充填量を減らすことである。しかしながら、これを行うと、1接続当たりの粒子が少なくなるために、特に非常に小さな電極パッドを用いている場合、電極の接続信頼性が損なわれることがある。導電性粒子が少ないとまた、回路接続の抵抗が増え、電流容量が減じる。さらに、粒子充填容積を減らすと、粒子の区分けによる短絡の位置を完全に突き止められない。

#### 【0005】

短絡に対峙するある方法が米国特許第5,180,888号(Sugiyama)に開示されている。このケースでは、導電性粒子に非導電性コーティングを与えて接着剤中に分散していた。この方法の場合、粒子ストリングは導電性経路を形成しない。代わりに導電する粒子のみが、対向する電極間に挟まれた粒子であり、非導電性コーティングを割るだけの十分な力で圧迫される。

#### 【0006】

導電性粒子はまた、1層が粒子を含み、もう1層は粒子を含まない2層接着剤系でも供給されている。この方法は、Watanabeらにより「フリップーチップ相互接続のための異方導電性接着剤フィルム」第9回国際マイクロエレクトロニクス会議議事録(日本、1996年)という記事に記載されている。回路層結合中、電極間の粒子は電極により挟まれて、電気的接触がなされ、一方、粒子を含まない第2の接着剤層からの過剰の接着剤が電極間から押出されて、短絡が生じる可能性のある領域から粒子を取り除く働きをする。しかしながら、第1の接着剤層中のランダムな粒子分散によりこの方法では粒子ストリングが形成される可能性があり、そのため短絡が生じる可能性がある。

#### 【0007】

粒子ストリングによる電気的短絡に関する問題については、他のやり方で取り組まれてきた。一つの方法は、ランダムに分散した粒子を分離するものである。これは機械的または磁氣的になされる。米国特許第5,240,761号(Callhounら)では、導電性粒子は延伸可能な接着剤層中にランダムに分散されていて、接着剤を二軸延伸して、各粒子を隣接粒子から離す。米国特許第4,7

37, 112号(Jinら)では、磁性粒子を接着剤層中にランダムに分散して、接着剤層に垂直な磁界を与えて、粒子同士を反発させている。これらの方法はいずれも、電氣的短絡に結びつく粒子ストリングや粒子凝集の危険性を減らすものであるが、その可能性を排除するものではない。しかしながら、電氣的短絡の危険性が減るということは、低粒子密度という犠牲を払うことになる。

#### 【0008】

粒子を分離する他のやり方は、粒子の規則配列を形成することである。規則配列の導電性接着剤は2つのカテゴリに分類される。配列単一粒子接着剤と配列クラスタ接着剤である。単一粒子接着剤は、粒子の単一層を含むz軸導電性接着剤であり、対向する電極パッドを接続する各粒子が上部と下部の電極パッドの両方に接触している。クラスタ接着剤は、導電性粒子の分離されたクラスタを含むz軸導電性接着剤である。

#### 【0009】

規則単一粒子接着剤は、導電性粒子を機械的に配列するか、導電性粒子を磁氣的に配列するかにより形成される。米国特許第5,300,340号(Calhou nら)は、接着剤層上の機械的に規則配列された導電性粒子を開示している。このプロセスは、周期的配列のゴム斑点でカバーされたドラムを、ほぼゴム斑点サイズの電氣的に導電性の球状粒子の流動床を通過させて回転するものである。粒子はゴム斑点に接合し、ドラムの過剰な粒子は吸引される。これによって導電性粒子のみが周期的配列のゴム斑点に残る。周期配列の粒子は、最終的に、感圧接着剤テープの接着剤側に移される。導電性粒子のサイズは、接着剤層の厚さとほぼ同じか、やや大きい。この結果、バッキング上に規則配列の単一導電性粒子の埋め込まれた接着剤層が得られる。

#### 【0010】

米国特許第5,616,206号(Sakatsuら)は、機械的規則配列の単一層粒子配列を開示している。このプロセスでは、周期配列の同サイズの孔を有するマスクを転移表面に配置する。次に、すべてほぼ同サイズの導電性粒子をそのマスクに吹き流す。粒子の直径は、ほぼマスクの厚さであり、特定数の粒子が各孔に適合する。マスクを取り除くと、規則配列の導電性粒子単一層を有する

転移表面が出てくる。しかしながら、この規則配列層の粒子は、接着剤層に転移してz軸導電性接着剤を形成しない。むしろ分離した接着剤層が回路層の各電極パッド上に形成される。回路層を導電性粒子上に降ろして、各電極の各接着剤層が導電性粒子部分と接触するようにする。粒子は各接着剤層に接合し、回路層は第2の回路と電氣的に接続する準備が整う。マスクを粒子と同じくらい薄くしなければならないため、この方法は非常に小さな粒子、特に直径10または20  $\mu$ mより小さな粒子に対しては修正ができない。薄いマスクであると、粒子を定位に保つのに必要な機械的特性を持たせることができない。

#### 【0011】

米国特許第5,221,417号(Basavanhalily)は、異方導電性接着剤を作成する導電性粒子の磁性規則配列を開示している。まず、相互に分離された強磁性体エレメントのマトリックス配列を基板上に形成し、エレメントを磁化させる。次に、単一層の強磁性体導電性粒子を強磁性体エレメントに接合する。粒子は、強磁性体エレメントが配置された場所のみに付着した規則配列粒子の単一層配列を形成する。次に、接着剤を規則配列の単一粒子層に接触させる。粒子が接着剤層に接合して、規則配列の単一粒子導電性接着剤を形成する。この方法は磁性粒子に限られる。さらに、特に小さな粒子または小さな粒子間隔が望まれるときには、接着剤層中に粒子ストリングが形成される危険性が尚ある。

#### 【0012】

規則配列粒子クラスタ導電性接着剤は、導電性粒子のクラスタを形成し、導電性クラスタを規則配列に配置し、クラスタを接着剤層に接合することにより作成される。米国特許第5,087,494号(Calhounら)は、予備形成されたパターンのポケットを有する可撓性キャリアフィルムを用い、このポケットに導電性粒子を充填することを開示している。この粒子は、ポケットにのみ存在し、ポケット間の領域にはない。ポケット中の粒子はまた、バインダー材料にも結合する。接着剤層を、粒子充填ポケットを覆うようにキャリアフィルム上に形成する。すると、接着剤が回路層の一表面に接合する。キャリアフィルムを剥がし、対向する回路層を位置合わせして、第1の回路層、接着剤および導電性粒子クラスタの上に適用する。圧力を加えながら、両基板上の対向する電極が電氣的



に接触するまで、導電性粒子を接着剤に押し付ける。圧力を加えると、粒子クラスタが「平坦」になって、対向する電極間の導電経路が単一層中の近接する粒子のグループを通るようになる。しかしながら、導電経路は、垂直区分け部分において複数の粒子も通過する。

#### 【0013】

米国特許第5,637,176号(Gillieoら)は、規則配列z軸導電性シート材料の作成方法を開示している。導電性シートは、連続または配列のスルーホールと、スルーホール内に配置された導電性粒子を含有する接着剤を有する誘電性キャリアシートを含む。導電性シートは、まず、分離した列の導電性粒子含有接着剤を形成し、次にその列の周囲に誘電性フィルムを形成することにより形成される。この代わりに、導電性シートは、予備形成された孔を有する誘電性シートを用い、導電性粒子を含有する接着剤球を誘電性シートの孔に押し込むことにより形成してもよい。得られる導電性シートは本質的に異方導電性接着剤ではなく、誘電性フィルムマトリックスにより分離された連続または配列の等方性導電性接着剤である。

#### 【0014】

回路上の電極パターンピッチが狭くなるにつれて、導電性接着剤中の粒子ストリングまたはクラスタによる電極間の電氣的短絡についての懸念が大きくなってきている。電極パターンのピッチは、電極間の間隙を減少させたり、電極パッドのサイズを減少させたり、この両方を行うことにより狭くすることができる。z軸導電性接着剤を用いるとき、導電性粒子のサイズ、粒子ストリングまたはクラスタの拡大の可能性、接着剤中の粒子密度はすべて、電極パターンのファインピッチ化を阻むものである。大きな粒子および粒子ストリングおよびクラスタは、電極パッド間の分離の下限となるものであり、一方、導電性粒子の密度は、電極パッドのサイズの下限となるものである。従って、拡大した粒子ストリングがなく、小さな導電性粒子を用いることができ、所望の粒子間隔で最大の粒子充填を行える単一粒子層のz軸導電性接着剤が業界では望まれている。

#### 【0015】

これらの寸法上の要件に加えて、導電性接着剤に用いられる粒子の種類につい

での制限が、電氣的接続の信頼性にも影響する恐れがある。例えば、強磁性体粒子が必要なときは、好ましい粒子は固体金属粒子である。固体金属強磁性体粒子は硬く、回路層を積層するのに用いる圧力下では変形しない。粒子のサイズにばらつきがある場合には、電極対間に最初に接触する大きな粒子により、小さな粒子が他の電極対と接触するのを妨げられるため、このことは重要である。しかしながら、変形可能な金属粒子を用いる、または金属でコートされた変形可能な粒子を用いると、回路層を積層するのに用いる圧力によって、最初に接触する大きな粒子が変形する傾向があり、小さな粒子もまた接触して、回路上のすべての接続の信頼性を確実なものにさせる。

#### 【0016】

##### 発明の概要

本発明の異方導電性接着剤は、特にファインピッチの回路（数百マイクロメートル以下の寸法の電極間隔および電極パッドを用いるもの）についてこうした問題に取り組むものである。本発明は、所定のパターンの導電性粒子を単一層で有する異方導電性接着剤を提供する。粒子の配置は、拡大した粒子ストリングが形成されないよう機械的に束縛されている。このように、回路電極間の間隔は、接着剤中の粒子サイズに近づく。さらに、粒子が規則配列パターンで構成されているため、粒子密度は非常に小さな電極パッドを収容するのに十分高いままととなる。

#### 【0017】

一態様において、本発明は、ほぼ均一な厚さを有し、複数の導電性粒子を有する接着剤層からできた異方性接着剤を提供する。導電性粒子は接着剤層の厚さより少なくともやや小さいサイズを有する。粒子はそれぞれ接着剤層に接合して、粒子部位の周期的配列で構成されている。粒子部位の大部分が、所定の最大数の粒子以下であり、粒子は特定の粒子部位に近接するように構成されている。粒子部位の大部分はまた、少なくとも所定の最低数の粒子を含有しているのが好ましい。粒子部位の大部分は、同じ所定数の粒子を含有しているのがより好ましい。

#### 【0018】

他の態様において、本発明は、剥離ライナ、導電性粒子および接着剤層を含む

異方導電性接着剤テープを提供する。剥離ライナの表面には、所定の幅、長さおよび深さを有し、深さが各々ほぼ同じである複数の凹部があるという特徴を有している。導電性粒子は単一層中の凹部にあり、凹部間の剥離ライナ領域には導電性材料は実質的にない。接着剤層は、凹部を有する剥離ライナ側にあり、個々の粒子が接着剤層に接合するよう導電性粒子を接触させる。接着剤層を剥離ライナから除去すると、導電性粒子がライナに付いてくる。

#### 【0019】

本発明はまた、本発明の異方導電性接着剤の作成方法もカバーしている。第1の工程は、ある長さ、幅および深さを有し、各々が実質的に同じ深さを有する複数の凹部を有することを特徴とする低接着性表面を有するツールを与えるものである。任意で、このツールは再使用可能またはバックングとして接着剤に残る剥離ライナであってもよい。次に、導電性粒子を凹部に入れて、導電性粒子が凹部内で単一層を形成するようにする。凹部間の領域においてツールに残った導電性粒子をすべて除去する。最後に、接着剤層をツールの低接着性凹部表面に形成し、凹部中の導電性粒子が接着剤層に接合するようにする。接着剤層は、導電性粒子が付いたツールから除去することができる。任意で、接着剤を低接着性表面を有するバックングフィルムに積層して、異方導電性接着剤を使用、出荷および保管しやすいように取り扱い、巻き上げてよい。

#### 【0020】

本発明はまた、本発明の異方導電性接着剤を用いた別個の回路層間の電気接続の形成方法もカバーしている。まず、対応の電極パターンを有する2枚の回路層を与える。次に、本発明の異方導電性接着剤を回路層の片面に接合する。次に、第2の回路層を位置合わせして、第1の回路層上の導電性接着剤と接触するように配置する。最後に、回路層に圧力を加えて、異方導電性接着剤の導電性粒子によって電極対間が接触するまで導電性粒子を接着剤層に押し付ける。

#### 【0021】

詳細な説明

A. 異方導電性接着剤

第1の実施形態

図1(a)に、本発明の異方導電性接着剤の一実施形態の平面図を示す。異方導電性接着剤10には、接着剤層12と接着剤層12に接合した導電性粒子16が含まれる。導電性粒子16は、粒子部位14で構成されている。導電性粒子16以外、接着剤層12には導電性材料は実質的に含まれていない。

#### 【0022】

各粒子部位14にはゼロかそれ以上の粒子が含まれている。2個以上の粒子が粒子部位にあるときは、粒子は他の粒子に近接して存在していて、好ましくは他の粒子に接触している。粒子部位14は、接着剤層12を跨ぐ周期的配列で構成されている。図1(a)の場合、粒子部位14はそれぞれ2個の近接粒子を含み、粒子部位は六角配列で構成されている。粒子部位を六角配列で構成し、1粒子部位当たり2個の粒子を用いるのは単なる例示に過ぎず、本発明または請求項の範囲を限定するものではない。

#### 【0023】

粒子部位はいくつの数の不連続粒子を含んでいてもよい。粒子部位は好ましくは10個以下の粒子、より好ましくは5個以下の粒子を含む。しかしながら、全粒子部位が同数の粒子を含む必要はない。むしろ、1粒子部位当たり最大数の粒子となるような1粒子部位当たり所望の数の粒子を選ぶ。粒子部位の大部分が、最大数以下の粒子を含む。時には、粒子部位は1個か2個(以上)の過剰の粒子をその境界に含むことがある。粒子部位の80%以上が、所定の最大数以下の粒子を含むのが好ましい。1粒子部位当たり最低数の粒子を選ぶのも好ましい。かかる場合には、粒子部位の大部分が少なくとも所定の最低数の粒子を含むべきである。最低数を規定した場合、粒子部位の80%以上が最低数の粒子を含むのが好ましい。さらに、1粒子部位当たりの粒子の過剰数も規定するのが望ましい。かかる場合、粒子部位は時には所望の数より多いまたは少ない粒子を含んでいてもよい。粒子部位の大部分は、正確な所望の数の粒子を含有しているのが好ましい。正確な数を規定した場合、粒子部位の少なくとも75%が所望の正確な数の粒子を含むのがより好ましい。

#### 【0024】

好ましくは、1粒子部位当たりの粒子の所望の数は2個以上の粒子である。粒

子が複数あると、信頼性のない電極接続の危険性を引き起こす可能性につながる、失われたり、異常に小さな粒子に対する保険として代理の役目を果たす。しかしながら、接続される回路上の電極パターンのピッチは粒子部位にある粒子のサイズおよび数により異なることから、1部位当たりの所望の数の粒子は、好ましくは10個未満、より好ましくは5個未満、最も好ましくは3個未満である。

#### 【0025】

粒子部位は、規則配列の2次元パターンで構成してよい。粒子部位は、規則的な2次元配列で構成するのが好ましい。矩形、正方形および六角形は特別な場合である。配列内の粒子部位は同じサイズである必要はない。すなわち、1粒子部位当たり所望の数の粒子は部位によって異なる。かかる場合、所望の数の粒子は配列的に部位によって異なる。例えば、粒子部位は、1粒子部位当たり所望の数の粒子が近接する部位で2～4の交互となる正方形配列で構成してもよい。粒子部位間の所望の間隔は、結合する回路の電極パターンにより異なる。例えば、フライングピッチ用途において、粒子サイズが $1\mu\text{m}$ 未満～約 $5\mu\text{m}$ または $10\mu\text{m}$ だと、粒子部位間の間隔は $5\mu\text{m}$ 未満～ $50\mu\text{m}$ を超える。粒子部位の間隔は、電極パターン、1部位当たりの粒子の所望の数および平均粒子サイズによってのみ定められる。

#### 【0026】

各導電性粒子は、接着剤層に垂直な与えられた列において2個以上の導電性粒子がないように、個々に接着剤層に接合する。これにより、下記のセクションCで述べるように、回路電極間の各導電性経路が確実に単一粒子を通るようになる。

#### 【0027】

図1(b)の断面図に示すように、導電整流子16のサイズは、接着剤層12の厚さより少なくともやや小さい。これが、ボンディング中、電極間の隙間に押し込まれる過剰の接着剤材料となる。この利点については下記のセクションCで述べる。粒子サイズは、球状粒子の場合には直径で、不規則形状粒子の場合には平均直径で測定される。各導電性粒子はほぼ同じサイズでほぼ球であるのが好ましい。所望の平均粒子サイズは、用途によって幅がある。結合する回路上の電極

間の間隔や1粒子部位当たりの粒子の所望の最大数を考慮して、平均粒子サイズを決めることができる。例えば、 $50\mu\text{m}$ の電極ピッチを用い、各粒子部位が2個の粒子を有する場合には、所望の平均粒子サイズは $1\mu\text{m}$ 未満～ $10\mu\text{m}$ を超える範囲となる。粒子の平均サイズを乗算した1粒子部位当たりの粒子数は、回路上の電極間の間隔よりも少なくともやや少なくなければならない。

#### 【0028】

導電性粒子は、導電性材料または連続した導電性コーティングを有する材料から作成することができる。用途に応じ、導電性粒子は変形可能で、変形可能な金属か連続した導電性コーティングがコートされた変形可能な核粒子により作成することができる。しかしながら、ある用途においては、例えば、NiやNiコート金属粒子のような変形不可能な粒子が望ましいこともある。

#### 【0029】

接着剤12はフィルムに形成することのできる接着剤であればいずれであってもよい。接着剤層は室温で導電性粒子より柔らかいか、圧力および/または熱を加えた際に導電性粒子より柔らかくなるものであるのが好ましい。このやり方では、圧力、熱またはこの両方を加えた際に接着剤を少なくともやや変形可能か流動可能とすることができる。例えば、接着剤はエポキシ系の熱硬化性接着剤であってもよい。接着剤はまた熱可塑系接着剤であってもよい。選ぶ接着剤は特定の用途により異なるため、考慮すべき特性としては、熱および/または圧力を加えた際の接着剤の流動性、接着剤の耐クリープ性および接着剤の高温特性が挙げられる。

#### 【0030】

有用な接着剤組成物としては、米国特許第5,143,785号(Pujolら)、第5,330,684号(Emorira)、第5,362,421号(Kroppら)および第5,457,149号(Hallら)に記載されているものが挙げられる。これらの特許には、硬化前は粘着性の低い、または粘着性のない撓み性のあるフィルムに形成できる一液性の硬化可能な材料に処方された接着剤組成物が記載されている。硬化後、これらの接着剤フィルムは、約 $100\sim 140^\circ\text{C}$ の中～高ガラス転移温度( $T_g$ )を有する。これらの接着剤はまた、広範

囲の基板について比較的高い剥離および剪断強度も有している。一般にはこれらの接着剤を熱および圧力に数秒晒すことによって第1の基板に予備塗布し、次に第2の基板を位置合わせして、第1の基板に押し付け、接着剤を熱および圧力下で硬化する。これらの接着剤の一般的な硬化条件は150～200℃で5～20秒である。

#### 【0031】

好ましいフィルム接着剤組成物としては、熱硬化-熱可塑性ブレンドが挙げられる。かかるブレンドに有用な熱硬化樹脂としては、エポキシおよびシアネート-エステル、およびアクリレートおよびメタクリレート、ウレタン、ポリイミド、その他が挙げられる。有用な熱可塑性材としては、フェノキシ、ポリエステル、ポリビニルブチラール、ポリスルホン、ポリカーボネートその他が挙げられる。通常、これらのブレンドは、熱硬化樹脂用の硬化剤または触媒を含む。エポキシは、アミン、イミダゾール、有機金属塩のいずれかで硬化させることができる。同様の有機金属塩はまた、シアネートエステル三量化にも用いられている。その他の有用な接着剤組成物としては、例えば、液体および固体熱硬化性樹脂のブレンド、または単純なホットメルト系が挙げられる。

#### 【0032】

取扱いおよび保管に便利のように、任意のバックアップフィルムを本発明の異方導電性接着剤に追加してもよい。図2(a)に、接着剤層12の非粒子側に積層されたバックアップフィルム18が示されている。逆に、バックアップフィルム18は、接着剤層12の粒子側に積層してもよい。図2(b)に示すように、バックアップフィルムを接着剤層の粒子側に積層すると、接着剤層12中の導電性粒子16が埋め込まれる傾向にある。任意のバックアップフィルムは、選んだ接着剤層に積層するのに好適で、導電性粒子は除去せず、後に接着剤層から除去可能なバックアップフィルムまたは剥離ライナとすることができる。任意のバックアップフィルムは、接着剤層に積層すると、バックアップフィルムおよび接着剤層を取扱い、保管、後の使用に便利な形態で巻き上げることができるよう両面に低接着性表面を有しているのが好ましい。

#### 【0033】

## 第2の実施形態

他の実施形態において、本発明の異方導電性接着剤は、構造化剥離ライナを含む。図3(a)および(b)に、任意の剥離ライナ28および導電性粒子16と接着剤層12を有する導電性接着剤構造20を示す。

### 【0034】

任意の剥離ライナ28は、一表面に一連の凹部24を有するフィルムである。ライナ28に凹部24を形成するプロセスは、後のセクションBで述べる。図3(a)および(b)には、剥離ライナ上に周期的な矩形配列で構成された矩形凹部が示されているが、凹部は所望の形状とし、所望のパターンで構成してよい。示され、記載された凹部の形状およびパターンは単なる例示に過ぎず、本発明または請求の範囲を限定するものではない。しかしながら、以下で明らかとなる理由から、凹部は実質的に同じ深さを有することが重要である。剥離ライナ自身は、接着剤層から剥がすことができるよう可撓性であるのが好ましい。剥離ライナに剥離特性を与えるために、少なくとも、凹部を有する剥離ライナ面は低接着性表面で、好ましくは、剥離ライナの両面ともが低接着性表面である。

### 【0035】

導電性粒子16は、任意の剥離ライナ28の凹部24中に配置される。凹部間の剥離ライナの表面領域には、導電性粒子16やその他導電性材料が実質的にないのが好ましい。粒子は凹部において単一層で存在している。好ましくは、粒子のサイズは、凹部の深さとほぼ同じで、凹部に粒子の単一層が充填できるのみとする。導電性接着剤を用いて、対向する電極パッド間に電気的な接触を行うときには、複数の単一粒子経路が各電極接続に存在するものの、パッド間の各導電性経路は単一の導電性粒子となるように粒子の単一層とするのが望ましい。これにより、全体の導電性経路の抵抗を増加させる可能性のある1経路当たりの接触表面の数が減じる。

### 【0036】

導電性粒子はほぼ同じサイズであるのが好ましい。粒子が他の粒子より大幅に大きいと、大きな粒子により、小さな粒子が電極対における両電極の電気的な接触を行うのが妨げられる可能性がある。導電性粒子は、導電性材料または導電性



材料でコートされた固体または中空絶縁材料から作成することができる。任意で、導電性粒子は、圧力および／または熱を与えると少なくともやや変形可能であってもよい。大きな粒子がまず電極間の接触を行うと、粒子は圧力または熱で圧縮されて小さな粒子も電極対における両電極と接触するため、変形可能な粒子によりサイズ変化の許容度が大きくなる。

#### 【0037】

接着剤層12は、任意の剥離ライナ28の上部に形成されて導電性粒子16と接触する。導電性粒子は個々に接着剤層に接合し、接着剤層が剥離ライナから除去されると、導電性粒子は図3(a)および(b)に示すように接着剤層に残る。接着剤層は、実質的に均一な厚さを有するのが好ましい。接着剤層は、少なくともやや流動可能か、または少なくとも導電性粒子よりも柔らかくし、回路層が、間にある導電性接着剤と共に押されたときに、導電性粒子が接着剤層を通じて押されて、最終的に両回路層上の電極と接触する。回路層ボンディング中に導電性粒子に浸透する接着剤を適切に軟化するために、接着剤層に熱を与えることが必要な場合と必要でない場合とがある。

#### 【0038】

##### B. 本発明の導電性接着剤の作成方法

本発明の異方導電性接着剤を作成するために、導電性粒子はそれぞれの数の規則配列で配置する。選んだサイズの規則配列の凹部に粒子を機械的に拘束することにより規則配列に粒子を配置する。最初の工程は、周期的配列で構成されたかかる複数の凹部を有するツールを与えることである。ツール中の凹部が最終的に導電性接着剤の粒子部位を画定する。凹部はすべてほぼ同じ深さとし、粒子の層のみが、与えられた凹部に存在できるよう、導電性粒子の平均サイズに対応しているのが好ましい。凹部の幅および長さは、粒子サイズおよび1部位当たりの粒子の所望の数によって定められる。ツールの凹部表面は、後述する理由のために低接着性表面であるのが好ましい。

#### 【0039】

次の工程は、凹部を導電性粒子で充填し、同時に、凹部以外のツールの領域に存在する導電性粒子を除去するものである。図4に、凹部への充填と過剰粒子の

除去の好ましい方法を示す。凹部44の規則配列を有するツール38を、導電性粒子16をツールの凹部表面にランダムに付着させる粒子ディスペンサ30を通り過ぎるように進める。選んだ導電性粒子は、凹部の深さとほぼ同じサイズとしなければならない。これにより、粒子の単一層のみを各凹部に充填することができる。粒子は、均一とし、扱いやすくするために、実質的に球状であるのが好ましい。上述した通り、粒子は実質的に同じサイズであるのが好ましい。しかしながら、変形可能な粒子を用いると、粒子のサイズ変化に対する許容度が増大する。

#### 【0040】

ツールは、ツールを進めるプロセスが連続して行えるような回転ベルトまたは回転ドラムの表面に取り付けられた一連の剛性板であってもよい。この代わりに、ツールは、ベルトまたはドラム（再使用された）のいずれかに取り付けられた、あるいは導電性接着剤がライナとして残るロールから供給される（後述する）可撓性フィルムであってもよい。

#### 【0041】

ツール38が粒子ディスペンサ30を通過する際、導電性粒子16が分配されてツールの表面を実質的に覆う。粒子16はランダムにツール38上へと落ち、ある粒子は凹部を充填し、ある粒子は凹部間の領域に存在し、ある粒子は他の粒子の上に存在する。ツール38および粒子16は、ドラム32へと進む。ドラム32は、通過する際にツール38の表面を掃拭するブラシ34を備えている。ドラム32はツール38の進行方向と逆に回転する。ドラムおよびツールの動作方向は、図4に矢印で示してある。ブラシ34の長さおよび剛性は、用いる導電性粒子のサイズおよび種類に応じて選ぶ。小さな粒子だと小さめのブラシが必要であり、重い粒子だと硬めのブラシが必要となる。ツール38がブラシ34を通過する際、ブラシが粒子16を凹部44へと掃拭し、凹部を充填する。ブラシはまた、凹部間の領域から粒子を除去する。過剰の粒子は、ツールの未掃拭部分へと押し戻されるか、あるいはブラシによって捕捉される。任意の吸引装置36をドラム32の上に置いて、ブラシに捕捉された過剰の粒子を除去してもよい。

#### 【0042】

ツールの凹部が導電性粒子で充填されると、凹部間のツール領域に存在する導電性粒子はすべて実質的に除去されて、接着剤層が塗布される。接着剤層はツールの凹部側に塗布されて、ツールの幅を実質的に覆って、粒子に接合する。接着剤層は、実質的に均一な厚さを有するのが好ましい。接着剤層は、ツールおよび粒子の上部に接着剤層を積層する、といった通常の方法、または接着剤材料を液体としてツールおよび粒子に適用して、ツール上で接着剤を硬化することにより塗布してよい。しかしながら、接着剤層を塗布すると、粒子が接着剤層に個別に接合して、導電性接着剤をツールから除去すると、導電性粒子が接着剤層に残ったままとなる。

#### 【0043】

接着剤層を供給した後、任意のバックングフィルムを導電性接着剤に積層してよい。図2(a)および(b)に示すように、バックングフィルムは、接着剤層の非粒子側または接着剤層の粒子側に積層してよい。バックングフィルムの面は、導電性接着剤が後に使用する際に容易に除去できるよう低接着性表面であるのが好ましい。バックングフィルムの両面が低接着性表面であると、保管、出荷および後の使用に便利な形態で、導電性接着剤をバックングフィルムと共に巻き上げることができる。

#### 【0044】

この代わりに、上述したように、ツール自身を、導電性接着剤の剥離ライナとして機能する低接着性表面を有する可撓性フィルム材料から作成してもよい。剥離ライナ材料に、予備作成フィルムをエンボス加工したり、液体樹脂材料を押し出して硬化させる等の手段により凹部の規則配列を施してもよい。いずれの方法においても、規則配列のバンプを有するマスターツールを用いる。マスターツールのバンプは、直接エンボス加工か、バンプ周囲の液体樹脂材料の硬化のいずれかにより、凹部としてライナに再生される。剥離ライナを凹部ツールとして用いるときは、接着剤層は、剥離ライナを再使用できるよう、処理中に剥離ライナから除去するか、あるいは、剥離ライナが導電性接着剤のバックングフィルムとして機能するよう、剥離ライナと共に残す。

#### 【0045】

### C. 回路層の電気接続

組み立てたら、本発明の異方導電性接着剤は取扱いおよび使用に便利な形態とする。用途として、本発明の異方導電性接着剤は、位置合わせされた電極パターンを有する2つの回路または回路層を電気接続するのに有用である。

#### 【0046】

図5(a)から(c)に、本発明の異方導電性接着剤を用いた2枚の回路層の電気接続方法における様々な工程を示す。図5(a)に、任意のバックグフィルム18に積層された接着剤層12に接合された導電性粒子16を有する本発明による異方導電性接着剤を示す。図5(a)に示された構造は例示として用いられる。図1～3に示したようなその他の構成もまた用いることができる。バックグフィルムを有する構造を用いるのが便利であるが、かかる構造を用いる必要はない。

#### 【0047】

次に、本発明の異方導電性接着剤を、図5(b)に示すように、回路層50の電極52aおよび52bと接触させる。導電性粒子は導電性接着剤に均一に分散されているため、接着剤を回路層の電極と位置合わせする必要がない。導電性接着剤のバックグに圧力を加えてもよい。圧力を加えると、電極上に載っている導電性粒子が接着剤層に埋め込まれて、接着剤層が、電極表面と接触し、回路層および電極パターンの輪郭にやや沿うようになる。導電性接着剤を塗布すると、電極間に間隙56のような間隙領域が作られる。この時点で、もしバックグフィルムがあれば除去する。

#### 【0048】

任意のバックグフィルムを除去した後、電極62aおよび62bを有する第2の回路層60を、その電極パターンが回路層50の電極パターンと位置合わせされ、向き合うように配置する。回路層60を露出した接着剤層と接触するように置く。回路層60に圧力を加えて、電極62aおよび62bが、電極対52aおよび52bと接触している導電性粒子と電氣的に接触するまで接着剤層を変形する。任意で、熱も加えて、圧力下でより容易に変形するよう接着剤層を軟化させる補助としてもよい。

## 【0049】

圧力を加えると少なくともやや変形可能だが、接着剤層材料よりは硬い導電性粒子を用いてもよい。これによって、粒子の小さなサイズ変化が許容される。変形可能な粒子を用いると、電極対における両電極と最初に接触する大きな粒子を、小さな粒子も電気接触できるようになるまで垂直方向に圧縮することができる。これによって、できる限り多くの導電性経路を確保することから全体の電気接続の信頼性が増大する。

## 【0050】

導電性粒子は、接着剤層の厚さより小さいため、電極対間の接着剤層材料は電極間の間隙領域に押し出さなければならない。過剰の接着剤層材料は、図5(c)に示すように、間隙56のような間隙を充填する傾向にある。過剰の接着剤層材料により間隙が充填されると、ボンディングの表面積が増大し、接着が促される。間隙を絶縁材料で充填することにより短絡も防ぐ。さらに、接着剤層材料が間隙の両側から各間隙へ押し込まれるため、電極間の間隙に存在する導電性粒子は電極から押し出される傾向にあり、この結果、短絡を招く電極間の間隔に形成される粒子または粒子ストリング形成の可能性を減じる「押し流し」効果が得られる。

## 【0051】

導電性粒子は接着剤層上の単一層中に存在するため、電極間の各導電性経路は単一粒子を通る。これにより、接続の抵抗を増加させる可能性のある接触表面の数が最小になる。また、与えられた電極対について複数の単一粒子経路を作成するため、信頼性を増大する冗長性が与えられる。

## 【0052】

## 実施例

以下の実施例は、本発明の様々な特定の実施形態を説明するものであって、本発明および請求の範囲を限定するものではない。

## 【0053】

図6(a)～(e)はそれぞれ、本発明の方法に従って、ツールの凹部に導電性粒子が充填された後の本発明の凹部のあるツールの顕微鏡写真である。各顕微

鏡写真は、導電性粒子の充填された周期的な矩形配列の凹部を有するツールを示している。凹部のサイズ、凹部配列のサイズおよび粒子の種類は変えた。各ケースにおいて、凹部の深さは、凹部に粒子が単一層で存在するようなものとする。様々な凹部パターンおよび粒子の種類およびサイズ分布によって、各パターンについて1粒子部位当たりの粒子数が異なった。しかしながら、すべてのケースにおいて、凹部間のツールの領域に存在する粒子は観察されなかった。

#### 【0054】

図6(a)に、矩形配列で構成された凹部102aを有するツール100aを示す。粒子104aは、平均直径 $4.9\mu\text{m}$ の金がコートされたポリマー球であった。ツールにある凹部に極めて均一に充填させるために、粒子サイズを小さくした。確かに、3個の粒子を含有していた凹部がたまにあり、1個の粒子または粒子を含有していなかった凹部も多少あるが、大多数の凹部が正確に2個の粒子を含有している。凹部パターンの間隔は単一粒子方向106aに約 $25\mu\text{m}$ 、2粒子方向108aに約 $15\mu\text{m}$ である。

#### 【0055】

図6(b)に、矩形配列で構成された凹部102bを有するツール100bを示す。粒子104bは、平均直径 $4.9\mu\text{m}$ の金がコートされたポリマー球である。ツールにある凹部に極めて均一に充填させるために、粒子サイズを小さくした。凹部は、一列に4個の粒子を含有する大きさに合わせてある。2個、3個または5個の粒子を含む凹部もいくつか観察されたが、大多数の凹部が正確に4個の粒子を含有していた。凹部パターンの間隔は単一粒子方向106bに約 $15\mu\text{m}$ 、4粒子方向108bに約 $35\mu\text{m}$ である。

#### 【0056】

図6(c)に、正方形配列で構成された凹部102cを有するツール100cを示す。粒子104cは、平均直径 $4.9\mu\text{m}$ の金がコートされたポリマー球である。ツールにある凹部に極めて均一に充填させるために、粒子サイズを小さくした。凹部は、1粒子部位当たり1個の粒子を含有する大きさに合わせてある。2個の粒子を含む、または粒子を含まない凹部もいくつか観察されたが、大多数の凹部が正確に1個の粒子を含有していた。凹部パターンの間隔は両方向106

cおよび108cに約15 $\mu$ mである。

【0057】

図6(d)に、正方形配列で構成された凹部102dを有するツール100dを示す。粒子104dは、平均直径4.9 $\mu$ mの金がコートされたポリマー球である。ツールにある凹部に極めて均一に充填させるために、粒子サイズを小さくした。凹部は、1粒子部位当たり4または5個の粒子を含有する大きさに合わせてある。2個または3個の粒子を含む凹部もいくつか観察されたが、大多数の凹部が正確に4個か5個の粒子を含有していた。凹部パターンの間隔は両方向106dおよび108dに約25 $\mu$ mである。

【0058】

図6(e)に、矩形配列で構成された凹部102eを有するツール100eを示す。粒子104dは、平均直径4.9 $\mu$ mのほぼ球状のニッケル粒子である。ただし、全体の粒子サイズ分布は極めて大きい。図6(e)は、大きな粒子サイズ分布が凹部の充填にどのように影響するかを示している。凹部は直径4.9 $\mu$ mの粒子を2個含有する大きさに合わせてあるが、多くの凹部が単一層で3個以上の粒子を含有していた。これは、小さな粒子が、充填中に凹部に既にあった大きな粒子間の間隙に掃拭されたためである。大多数の凹部が2~7個の粒子を含有していた。凹部パターンの間隔は短方向106eに約15 $\mu$ m、長方向108eに約25 $\mu$ mである。

【図面の簡単な説明】

【図1】 図1(a)は、本発明の異方導電性接着剤の平面図であり、図1(b)は、線1bに沿った(a)の導電性接着剤の断面図である。

【図2】 図2(a)および(b)は、本発明による異方導電性接着剤の断面図である。

【図3】 図3(a)は、本発明の異方導電性接着剤の一実施形態の概略図であり、図3(b)は、線3bに沿った(a)の導電性接着剤の断面図である。

【図4】 図4は、本発明による異方導電性接着剤の作成プロセスの概略図である。

【図5】 図5(a)~(c)は、本発明による2枚の回路層の電気接続工

程の概略図である。

【図6】 図6 (a) ~ (e) は、本発明による様々な粒子配置の顕微鏡写真である。

【図1a】

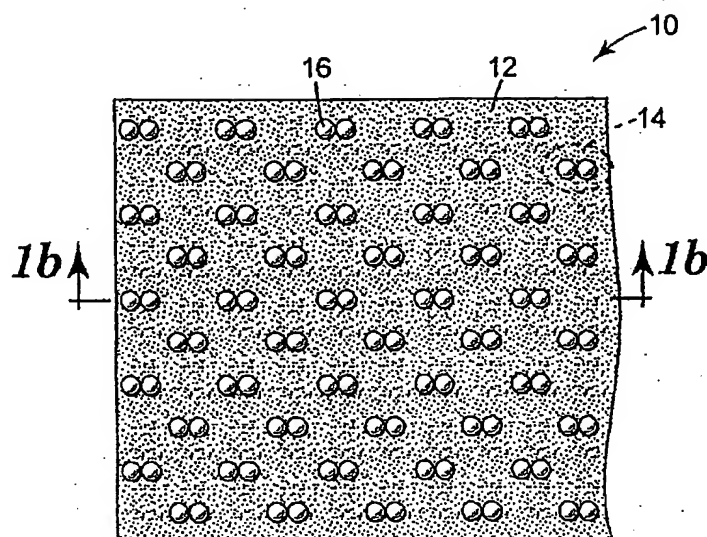


Fig. 1a

【図1b】

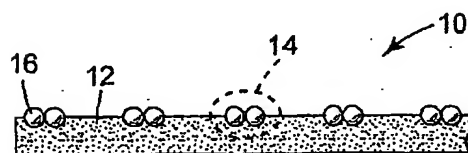


Fig. 1b

【図2a】

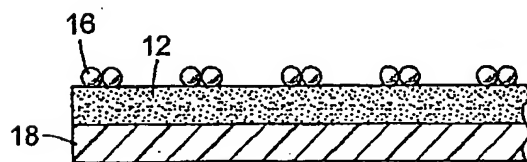


Fig. 2a



【図2b】

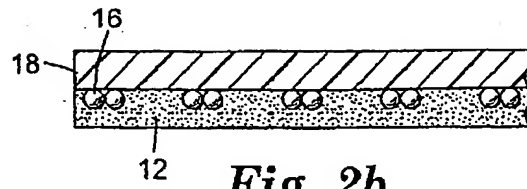


Fig. 2b

【図3a】

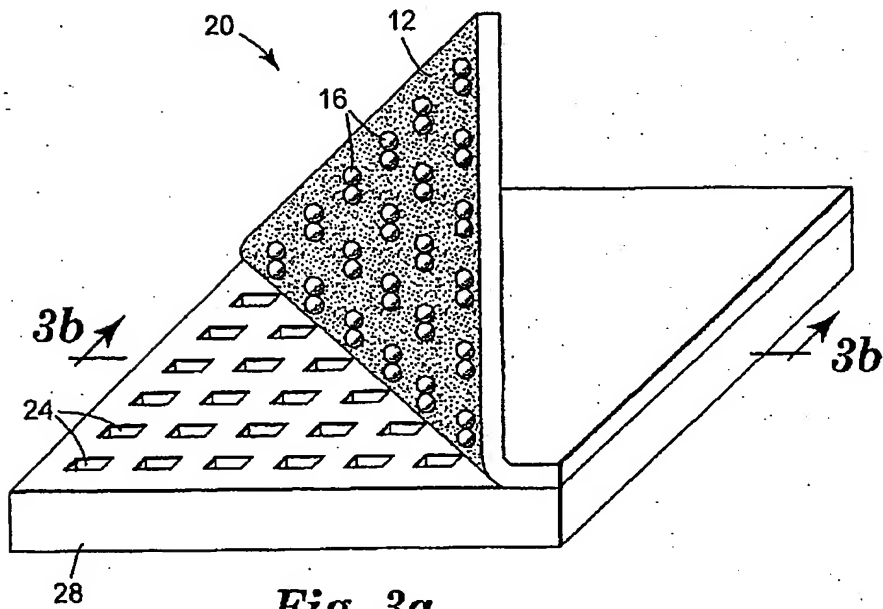


Fig. 3a

【図3b】

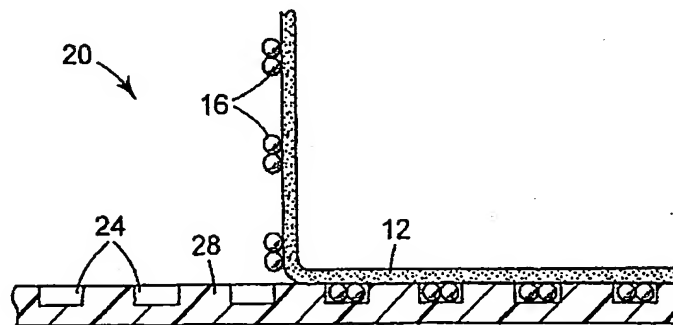


Fig. 3b

【図4】

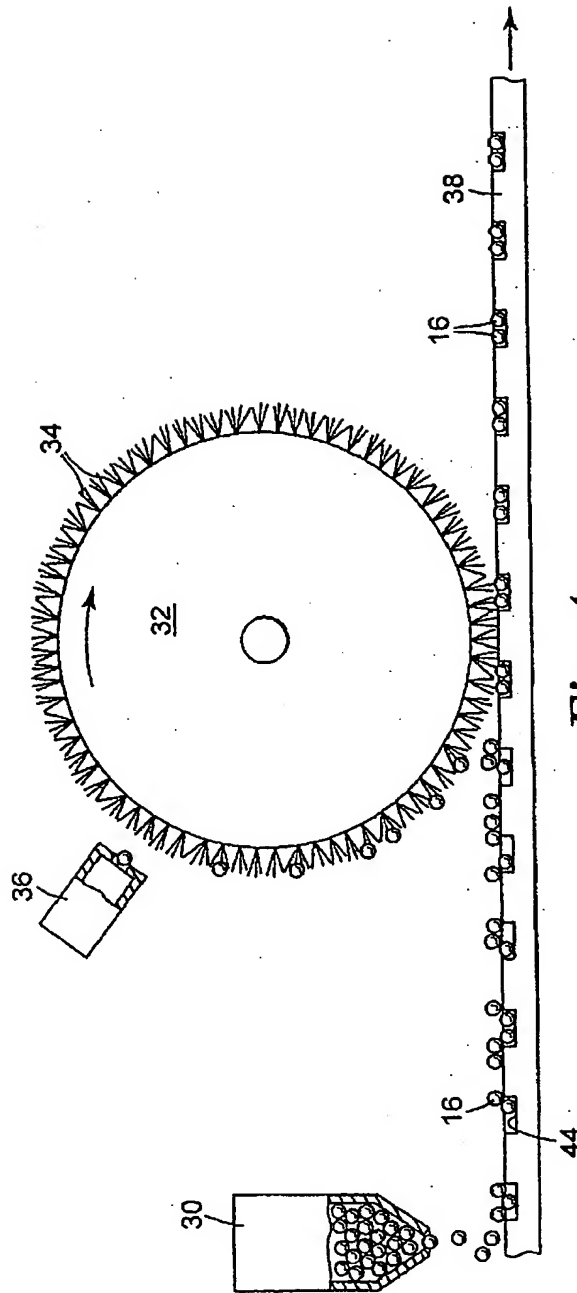
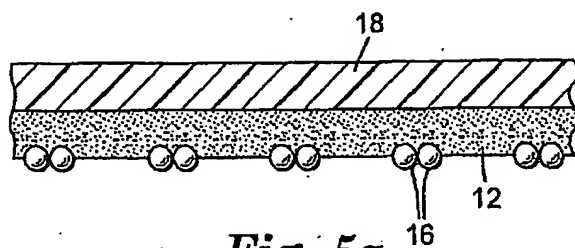
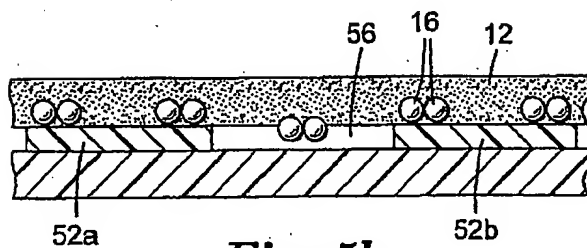


Fig. 4

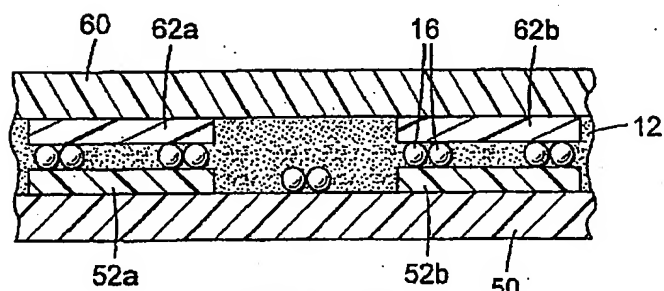
【図5a】

*Fig. 5a*

【図5b】

*Fig. 5b*

【図5c】

*Fig. 5c*

【図 6 A】

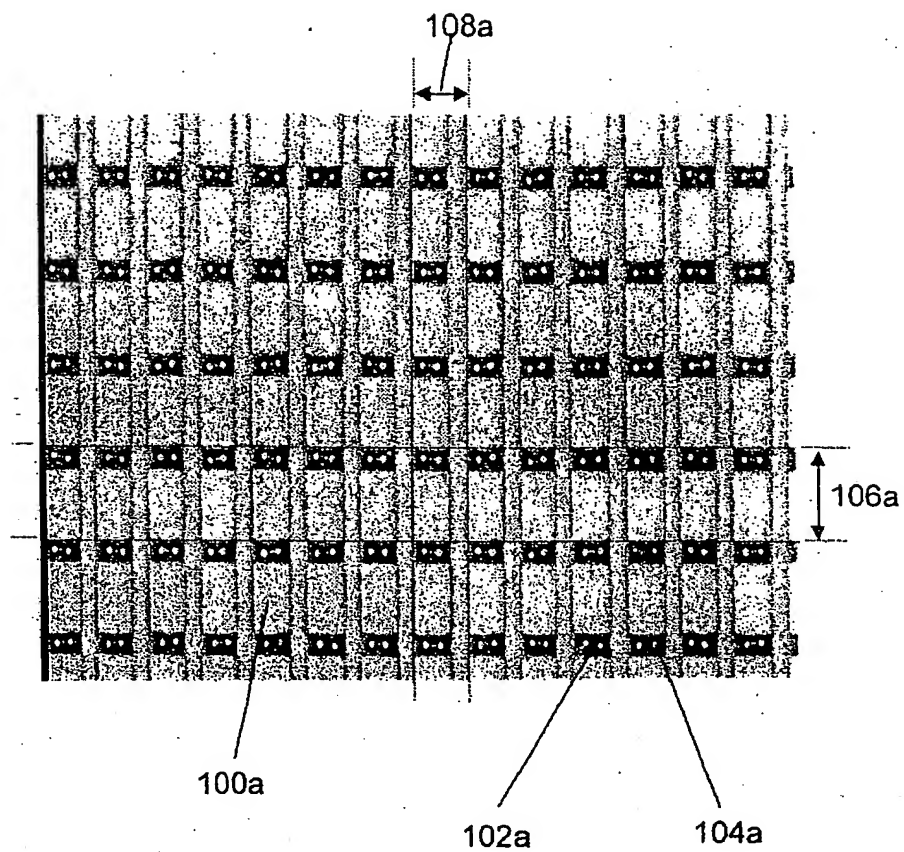


FIG. 6A

【図 6 B】

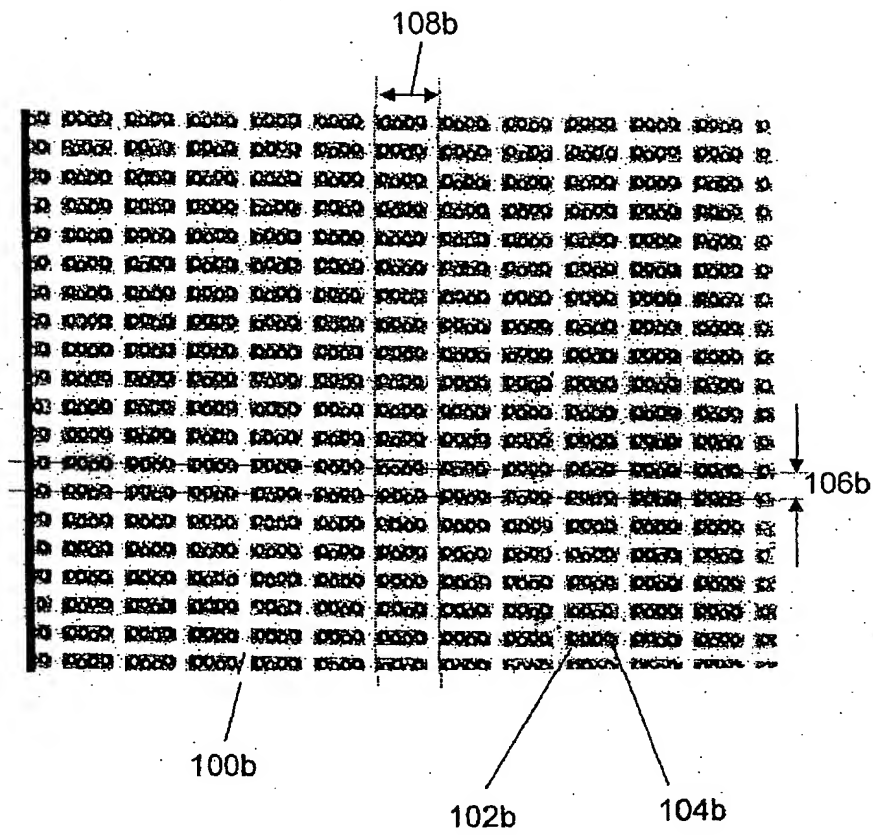


FIG. 6B

【図6C】

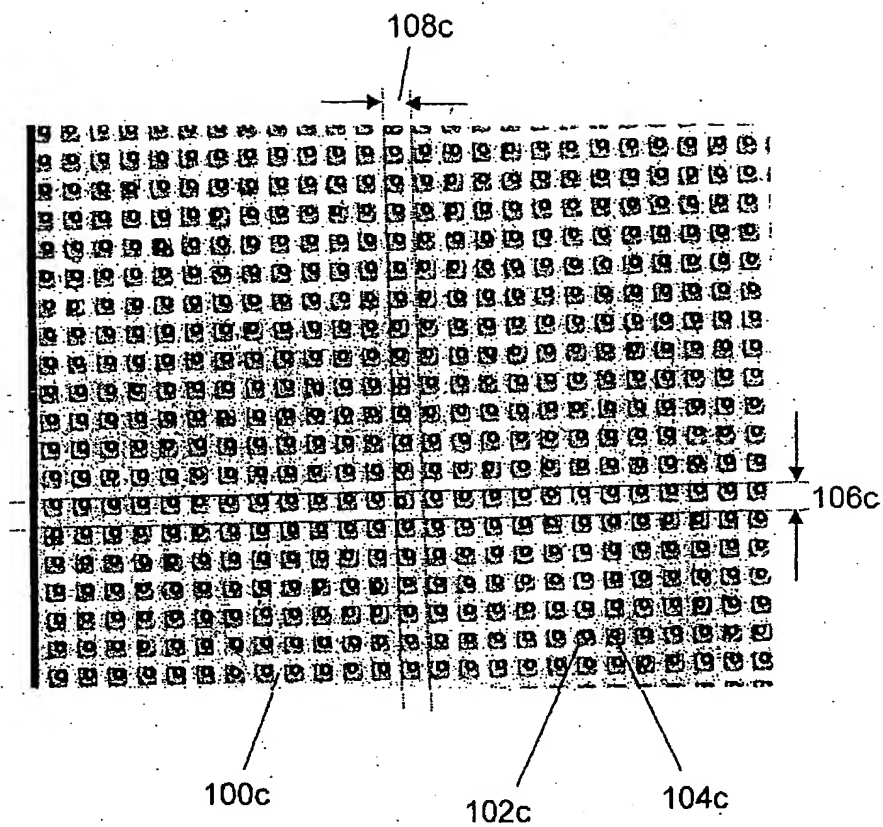


FIG. 6C

【図6D】

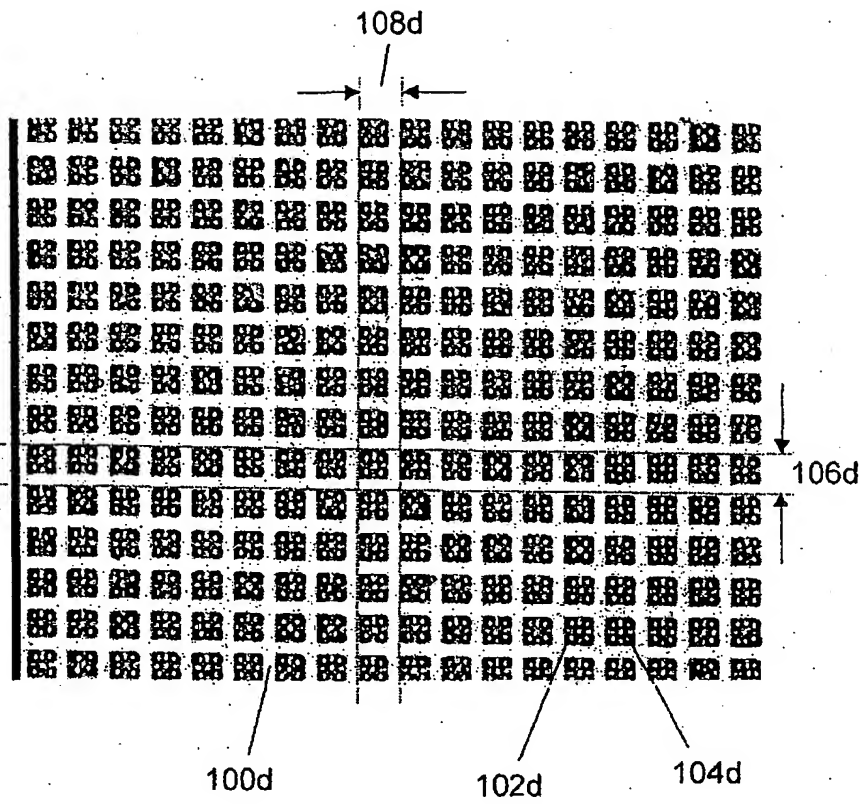


FIG. 6D

【図 6 E】

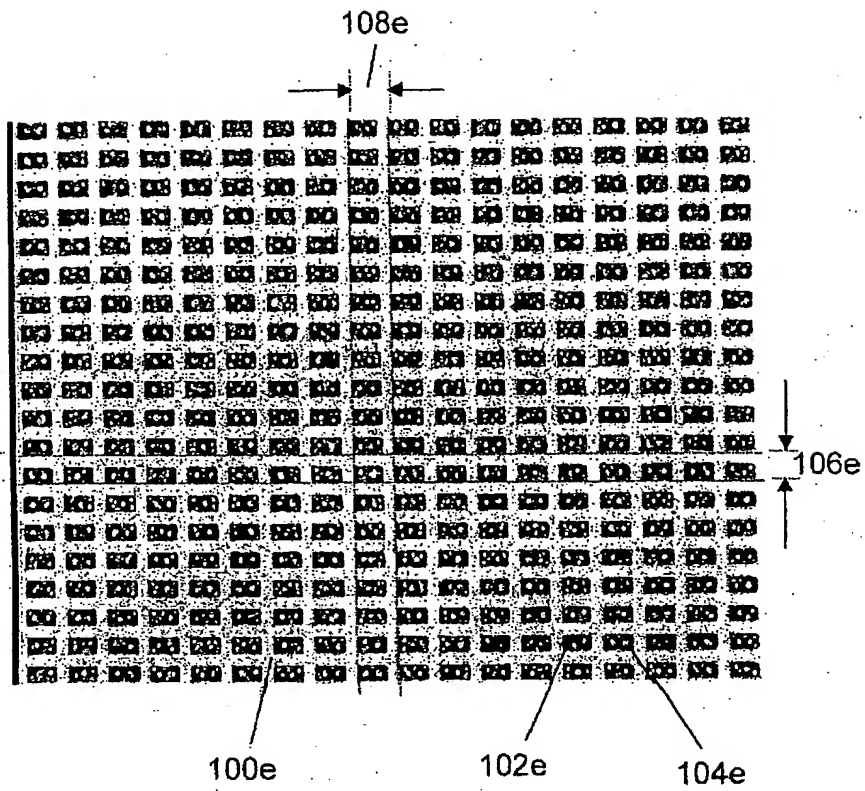


FIG. 6E



## 【国際調査報告】

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER IPC 6 - C09J9/02		International Application No. PCT/US 99/00460
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
B. FIELDS SEARCHED Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) IPC 6 - C09J		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category *	Cite(s) of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	EP 0 330 452 A (MINNESOTA MINING AND MANUFACTURING COMPANY) 30 August 1989 see abstract; figure 2 & US 5 300 340 A (CALHOUN ET AL.) 5 April 1994 cited in the application	1,4
A	US 5 240 761 A (CALHOUN ET AL.) 31 August 1993 cited in the application	
A	WO 97 12503 A (MINNESOTA MINING AND MANUFACTURING COMPANY) 3 April 1997	
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of box C. <input checked="" type="checkbox"/> Patent family members are listed in annex.		
* Special categories of cited documents : "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier document but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance: the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance: the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art. "Z" document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search 14 May 1999		Date of mailing of the international search report 27/05/1999
Name and mailing address of the ISA European Patent Office, P.B. 5518 Patentkan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3010		Authorized officer Mazet, J-F

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No.

PCT/US 99/00460

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP 330452 A	30-08-1989	AU 2866189 A	31-08-1989
		CA 1317002 A	27-04-1993
		DE 68914867 D	01-06-1994
		DE 68914867 T	10-11-1994
		ES 2053975 T	01-08-1994
		JP 2160311 A	20-06-1990
		KR 9708547 B	27-05-1997
		US 5494730 A	27-02-1996
		US 5300340 A	05-04-1994
US 5240761 A	31-08-1993	DE 3928570 A	01-03-1990
		GB 2223135 A,B	28-03-1990
		JP 2117980 A	02-05-1990
		KR 134191 B	18-04-1998
		SG 94094 G	28-10-1994
WO 9712503 A	03-04-1997	US 5672400 A	30-09-1997
		EP 0870418 A	14-10-1998

## フロントページの続き

(81)指定国 EP(AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OA(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG), AP(GH, GM, KE, LS, MW, SD, SZ, UG, ZW), EA(AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CU, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, UA, UG, UZ, VN, YU, ZW

(72)発明者 ビーター・ビー・ホジャートン

アメリカ合衆国55133-3427ミネソタ州セント・ポール、ポスト・オフィス・ボックス33427

(72)発明者 ヒロアキ・エイチ・ヤマグチ

アメリカ合衆国55133-3427ミネソタ州セント・ポール、ポスト・オフィス・ボックス33427

Fターム(参考) 4J004 AA08 AA10 AA11 AA13 AA14

AA15 AB03 AB05 CA06 CC02

CC05 DB02 FA05 GA01

4J040 DD071 DF041 DF042 DF051

DF052 EC001 EC002 ED001

EF111 EF112 EH031 EH032

HA066 HC07 HC23 HD41

JA08 JA10 JB01 JB02 KA03

KA16 KA42 LA06 LA09 MA10

MB03 NA19 PA30 PA33

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☐ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☒ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☒ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**